

JAERI-M  
84-227

使用済燃料輸送キャスクの遮蔽実験(5)

—PWR使用済燃料からの中性子発生量の測定—

1984年12月

田中 俊一・坂本 幸夫・山路 昭雄\*・中島 宏  
関田 憲昭・内藤 俣孝

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）  
あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城  
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department  
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

---

編集兼発行	日本原子力研究所
印刷	日立高速印刷株式会社

使用済燃料輸送キャスクの遮蔽実験(5)  
— PWR使用済燃料からの中性子発生量の測定—

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部  
田中 俊一・坂本 幸夫<sup>+</sup>・山路 昭雄<sup>\*</sup>・中島 宏  
関田 憲昭<sup>++</sup>・内藤 俣孝<sup>+</sup>

(1984年11月26日受理)

使用済燃料取扱施設の遮蔽安全性評価コードシステム、同データライブラリの検証実験計画に基づき、PWR使用済燃料の一部を抽出し、中性子発生量の絶対測定を行った。この実験は一連の実験についての中性子の線源条件を実験的に与えると同時に、ORIGEN、ORIGEN 2等の使用済燃料の線源強度計算コードの評価用データを取得することを目的としている。

実験では、平均燃焼度約36,000 MWd/tのPWR燃料集合体の中の燃料棒の上部、中間部、下部の3ヶ所から取出した燃料小サンプルについての測定が行われ、最終的に±7～8%の精度で燃料の単位体積当りの中性子強度が測定された。

---

+ 安全解析部  
++ 実用燃料試験室  
\* 船舶技術研究所

JAERI-M 84-227

Shielding Experiments for Evaluating a Shielding Safety Evaluation  
Code System to Spent Fuel Processing Facilities (5)

- Measurement of the Neutron Intensity Emitted from PWR  
Spent Fuel -

Shun-ichi TANAKA, Yukio SAKAMOTO<sup>+</sup> Akio YAMAJI\*,  
Hiroshi NAKASHIMA, Noriaki SEKITA<sup>++</sup> and  
Yoshitaka NAITO<sup>+</sup>

Department of Reactor Engineering  
Tokai Research Establishment, JAERI

( Received November 26, 1984 )

Measurements of neutron source intensity in PWR spent fuel samples were made according to the experiment plan to confirm the reliability of a shielding safety evaluation code system and data libraries. The purpose of the experiments is to obtain the experimental data of the neutron source intensity required for analyzing the series of shielding experiments, and to get the benchmark data on neutron source intensity in spent fuel to evaluate the calculation codes such as ORIGEN and ORIGEN2.

Small size samples of spent fuel were taken out from the upper, the middle and the lower parts of a PWR spent fuel assembly with an average burnup of about 36000 MWd/t, and their neutron emission rates were absolutely measured with a  $^{232}\text{Th}$  fission counter. The error of the measurement was estimated within 7 ~ 8 per cent.

Keywords : Spent Fuel, Neutron Source Intensity, Measurement, PWR,  
 $^{232}\text{Th}$  Fission Counter, ORIGEN2, Burnup, Benchmark Data

---

+ Department of Nuclear Safety Evaluation  
++ Department of Reactor Fuel Examination  
\* Ship Research Institute

## 目 次

1. 序 言 .....	1
2. 使用済燃料サンプルの準備 .....	1
3. 中性子源強度の測定 .....	2
3.1 測定装置 .....	2
3.2 測定器と測定回路 .....	2
3.3 $^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管の検出効率の校正 .....	2
4. 測定結果と検討 .....	5
4.1 測定データの $\chi^2$ 検定 .....	5
4.2 パルス波高分布の検討 .....	5
4.3 自然バックグラウンドの測定 .....	6
4.4 測定結果 .....	6
5. ま と め .....	6
謝 辞 .....	7
参考文献 .....	8
付録 ORIGEN 2 コードによる PWR 使用済燃料の 中性子放出強度の燃焼度依存性 .....	19

## Content

1. Introduction .....	1
2. Preparation of Spent Fuel Sample .....	1
3. Measurement of Neutron Intensity .....	2
3.1 Measuring Device .....	2
3.2 Detector and Detection Circuit .....	2
3.3 Calibration of the Efficiency for $^{232}\text{Th}$ Fission Counter .....	2
4. Experimental Results and Discussion .....	5
4.1 $\chi^2$ Test for Measured Data .....	5
4.2 Examination of Pulse Height Distribution .....	5
4.3 Evaluation of Natural Background .....	6
4.4 Experimental Results .....	6
5. Summary .....	6
Acknowledgements .....	7
References .....	8
Appendix : Neutron emission rate from PWR spent fuel calculated with ORIGEN2 code .....	19

## 1. 序 言

使用済燃料取扱施設の遮蔽安全性評価コードシステム、同データライブラリの検証実験計画に基づき、PWR使用済燃料の一部を抽出し、中性子発生量の絶対測定を行った。本測定は、先に行われた「PWR使用済燃料によるキャスク形状評価のための実験<sup>1)</sup>」および「PWR使用済燃料による線源形状評価のための実験<sup>2)</sup>」の解析に際しての中性子の線源強度を実験的に与えることを直接の目的としている他、合せてORIGEN<sup>3)</sup>およびORIGEN 2<sup>4)</sup>等の使用済燃料の線源強度計算コードの中性子源強度計算を評価するための実測データを得ることも目的としている。

使用済燃料からの中性子発生量の評価は最近、特に注目されるようになってきた問題である。それは、近年軽水炉燃料の高燃焼度化が進み、超Pu元素がより多く生成され、それに伴って使用済燃料からの中性子発生量が以前と比べ大幅に増加してきたことが最大の理由である。つまり、先の実験でも燃焼度が2倍になると中性子発生量が数10倍増加することが明らかにされている。中性子発生量の増加、すなわち超Pu元素の増加は、使用済燃料の貯蔵、輸送、あるいは再処理、それに再処理廃棄物の取扱い、再処理後の燃料の取扱い等において、中性子遮蔽の問題をはじめ幾つかの技術的課題を新たにひき起す要因となる。

しかし、使用済燃料の中性子発生量の測定はそう容易でない。それは、中性子と比べ7～8桁も強いガンマ線の存在下で中性子を測定しなければならないからである。従来の研究では使用済燃料集合体からの速中性子を減速し熱中性子をAu箔により測定しているだけであり、使用済燃料から放出される自発核分裂や $(\alpha, n)$ による速中性子を燃料集合体近傍で直接的に測定したのは本実験計画の中で行われた一連の実験<sup>1, 2)</sup>が最初である。つまり、これまで使用済燃料の中性子源強度計算コードを直接的に評価するための中性子測定データは全く得られていないのが実体である。

本実験では、使用済燃料からの中性子発生量を評価するため、先の実験<sup>1, 2)</sup>に使用したPWR燃料集合体から小さな燃料サンプルを抽出し、これについて速中性子発生量の絶対測定を行った。次章以下に、中性子測定法、測定装置、測定結果、および検討結果を述べる。

## 2. 使用済燃料サンプルの準備

測定の対象とした燃料集合体は、前の実験<sup>1, 2)</sup>において用いたC集合体（平均燃焼度約36,000 MWd/t）である。Fig. 1はC燃料集合体の全体の寸法と断面図を示すもので、14×14の配列をもつPWR燃料集合体である。燃料集合体の燃料棒の配列をFig. 2に示す。中性子源強度測定用サンプルは、この中のN-10の燃料棒より採取した。つまり、燃料棒の上端から約65 cm、250 cm、300 cmの付近から約1.5 cm長さの燃料棒をそれぞれ4個、計12個採り出し測定した。切り出されたサンプルの詳細な寸法はFig. 3およびTable 1に示す通りである。

## 1. 序 言

使用済燃料取扱施設の遮蔽安全性評価コードシステム、同データライブラリの検証実験計画に基づき、PWR使用済燃料の一部を抽出し、中性子発生量の絶対測定を行った。本測定は、先に行われた「PWR使用済燃料によるキャスク形状評価のための実験<sup>1)</sup>」および「PWR使用済燃料による線源形状評価のための実験<sup>2)</sup>」の解析に際しての中性子の線源強度を実験的に与えることを直接の目的としている他、合せてORIGEN<sup>3)</sup>およびORIGEN 2<sup>4)</sup>等の使用済燃料の線源強度計算コードの中性子源強度計算を評価するための実測データを得ることも目的としている。

使用済燃料からの中性子発生量の評価は最近、特に注目されるようになってきた問題である。それは、近年軽水炉燃料の高燃焼度化が進み、超Pu元素がより多く生成され、それに伴って使用済燃料からの中性子発生量が以前と比べ大幅に増加してきたことが最大の理由である。つまり、先の実験<sup>2)</sup>でも燃焼度が2倍になると中性子発生量が数10倍増加することが明らかにされている。中性子発生量の増加、すなわち超Pu元素の増加は、使用済燃料の貯蔵、輸送、あるいは再処理、それに再処理廃棄物の取扱い、再処理後の燃料の取扱い等において、中性子遮蔽の問題をはじめ幾つかの技術的課題を新たにひき起す要因となる。

しかし、使用済燃料の中性子発生量の測定はそう容易でない。それは、中性子と比べ7～8桁も強いガンマ線の存在下で中性子を測定しなければならないからである。従来<sup>5)</sup>の研究では使用済燃料集合体からの速中性子を減速し熱中性子をAu箔により測定しているだけであり、使用済燃料から放出される自発核分裂や $(\alpha, n)$ による速中性子を燃料集合体近傍で直接的に測定したのは本実験計画の中で行われた一連の実験<sup>1, 2)</sup>が最初である。つまり、これまで使用済燃料の中性子源強度計算コードを直接的に評価するための中性子測定データは全く得られていないのが実体である。

本実験では、使用済燃料からの中性子発生量を評価するため、先の実験<sup>1, 2)</sup>に使用したPWR燃料集合体から小さな燃料サンプルを抽出し、これについて速中性子発生量の絶対測定を行った。次章以下に、中性子測定法、測定装置、測定結果、および検討結果を述べる。

## 2. 使用済燃料サンプルの準備

測定の対象とした燃料集合体は、前の実験<sup>1, 2)</sup>において用いたC集合体（平均燃焼度約36,000 MWd/t）である。Fig. 1はC燃料集合体の全体の寸法と断面図を示すもので、14×14の配列をもつPWR燃料集合体である。燃料集合体の燃料棒の配列をFig. 2に示す。中性子源強度測定用サンプルは、この中のN-10の燃料棒より採取した。つまり、燃料棒の上端から約65 cm、250 cm、300 cmの付近から約1.5 cm長さの燃料棒をそれぞれ4個、計12個採り出し測定した。切り出されたサンプルの詳細な寸法はFig. 3およびTable 1に示す通りである。



### 3. 中性子源強度の測定

#### 3.1 測定装置

使用済燃料サンプルは、1個当り数Ciのガンマ線強度を有しており、本測定ではこのサンプル4個を同時に取扱うため、全量は10~20Ciになる。このため、実際の測定は日本原子力研究所の燃料試験施設内の鉛セル内で行われた。Photo.1に鉛セルの全容を示す。

Fig. 4は、鉛セル内に据付けられた「燃料小サンプルの中性子源強度測定用スタンド」の立面図である。スタンドの中心に、速中性子測定のための $^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管が据付けられており、その周囲の中心から5cm離れた位置に、燃料サンプルを90°の間隔で4個同時に設置した。

燃料サンプルは、燃料棒の上・中・下領域のそれぞれの領域について4個ずつ切り出したものを一組としてそれぞれの領域について中性子強度を測定した。

Photo.2は鉛セル内で測定中のスタンドと測定器、燃料サンプルの写真である。

#### 3.2 測定器と測定回路

燃料サンプルの中性子測定器として、 $^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管を利用した。この検出器は英国Centronic社製のFC165A型の核分裂計数管でPhoto.3に示すように約30mm直径、100mm長の有効体積を有し、 $^{232}\text{Th}$ が約 $1\text{mg}/\text{cm}^2$ の厚さで $165\text{cm}^2$ 塗布されたものである。

Fig. 5は $^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管の測定回路である。燃料サンプルから放出される中性子強度に対し、 $^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管の計数率は後述するように極めて少ない。このため、電氣的雑音等によるバックグラウンドを極力低く押えることが必要である。本測定系は強いガンマ線とアルファ線のパイルアップを避けるため、約10nsecで信号処理をしていることにより、本質的に高周波数の電氣的雑音に対する弱点を有している。このため、検出器から前置増幅器までの間は2重シールドすると同時に、Background検出回路を設け、電氣的に同時に入力する雑音を取除くため、Fig. 5の回路図に示すようにForward検出器との間で、約 $10\mu\text{sec}$ 幅でのアンチコインシデンスを行っている。電氣的ノイズはかなり短時間の間に数個~数10個入力するが、その頻度は極めて少ない(今回の実験では数回/日程度)ことと、Forward系の計数率も約 $10^{-3}$ cpsと小さいのでアンチコインシデンスによる計測時間のデットタイムは無視できる。

#### 3.3 $^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管の検出効率の校正

$^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管の測定値から中性子源強度を得るため、 $^{252}\text{Cf}$ 中性子源を用いて校正を行った。

$^{232}\text{Th}(n, f)$ 反応の $^{252}\text{Cf}$ 中性子スペクトルに対する平均の断面積は次式で与えられる。

$$\bar{\sigma}^{Cf} = \frac{\int \phi^{Cf}(E) \sigma(E) dE}{\int \phi^{Cf}(E) dE} \quad (1)$$

ここで、 $\sigma(E)$ はエネルギーEに対する $^{232}\text{Th}(n, f)$ の反応断面積で、 $\phi^{Cf}(E)$ は $^{252}\text{Cf}$ の中性子スペクトルである。

$^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管の検出効率を $\epsilon$ とすると、単位中性子当りの検出器の計数率 $R_0^{Cf}$ は次式で与えられる。

$$R_0^{Cf} = \epsilon \cdot \bar{\sigma}^{Cf} \quad (2)$$

ここで、 $\epsilon$ は $^{232}\text{Th}$ の原子数、幾何学的効率等すべての効率を含むものとする。

一方、 $^{232}\text{Th}(n, f)$ 反応に対する使用済燃料サンプルからの中性子に対する平均の断面積は次式で与えられる。

$$\bar{\sigma}^{SF} = \frac{\int \phi^{SF}(E) \sigma(E) dE}{\int \phi^{SF}(E) dE} \quad (3)$$

ここで、 $\phi^{SF}(E)$ は使用済燃料サンプルから放出される中性子スペクトルである。

そこで、 $^{252}\text{Cf}$ 中性子源と同じ幾何学的配置で燃料サンプルの中性子測定が行われた場合の検出効率が $^{252}\text{Cf}$ 中性子に対するそれと等しいとすると、燃料サンプルからの単位中性子当りの計数率 $R_0^{SF}$ は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} R_0^{SF} &= \epsilon \cdot \bar{\sigma}^{SF} \\ &= R_0^{Cf} \cdot \left( \frac{\bar{\sigma}^{SF}}{\bar{\sigma}^{Cf}} \right) \end{aligned} \quad (4)$$

従って、燃料サンプルの中性子強度は、(4)式を用いて $R_0^{Cf}$ 、 $\bar{\sigma}^{Cf}$ および $\bar{\sigma}^{SF}$ から得られることになる。

$^{232}\text{Th}(n, f)$ の断面積はFig. 6に示すように約700 keVの閾エネルギーを持つ反応である。また、 $^{252}\text{Cf}$ の中性子スペクトルは次式で与えられる。

$$\phi^{Cf}(E) = 0.373 \exp(-0.88 E) \sinh(\sqrt{2.0 E}) \quad (5)$$

Fig. 6の断面積と(5)式のスペクトルを用いて計算した。0.5 MeV～14.9 MeVの範囲での平均断面積は

$$\bar{\sigma}^G = 9.79 \times 10^{-2} \text{ barn} \quad (6)$$

である。

一方、使用済燃料サンプルについての平均断面積を求めるためには、使用済燃料から放出される中性子スペクトルを知る必要がある。Fig. 7は本実験で測定対象としているPWR使用済燃料についてORIGEN2<sup>4)</sup>コードを用いて計算した中性子のスペクトルで、比較のため(5)式の $^{252}\text{Cf}$ のスペクトルと共に示してある。このスペクトルとFig. 6の断面積を用いて得られる燃

料サンプルについての平均断面積は

$$\bar{\sigma}^{SF} = 8.66 \times 10^{-2} \text{ barn} \quad (7)$$

となる。

Fig. 8 は  $^{252}\text{Cf}$  および使用済燃料それぞれの中性子スペクトルの重みを掛けた  $^{232}\text{Th}(n, f)$  反応のエネルギー依存を表わしたものであり、非常によく似た分布をしていることが分る。このことは、 $^{252}\text{Cf}$  中性子は本測定系の校正線源として極めて適当であることを暗示している。

最後に、 $R_0^{\text{Cf}}$  は既に校正されている  $^{252}\text{Cf}$  の標準線源を用いて求めた。Fig. 9 は校正に使用した  $^{252}\text{Cf}$  中性子源の形状である。校正は、燃料サンプルの測定と全く同一の条件で測定することによって行われた。この際、 $^{252}\text{Cf}$  線源および使用済燃料サンプルの形状が小さく、その差も小さいため、線源形状の差異による幾何学的配置の誤差については無視した。

## 4. 測定結果と検討

### 4.1 測定データの $\chi^2$ 検定

$^{232}\text{Th}$  核分裂計数管の検出効率は極めて小さく、実際の測定結果は  $10^{-3}$  cps 程度であった。このため、計数装置の誤操作、中性子以外による異常信号などのデータを取除くため、一回の測定時間を  $10^3$  秒とし、燃料棒の上、中、下部のそれぞれの試料に対して 247～471 回の測定を行い、 $\chi^2$  検定による測定データの統計的考察を行った。

Table 2 は、燃料棒の上部、中間部、下部より採ったそれぞれの燃料ペレットに対する測定結果である。本実験で測定している中性子は、自発核分裂、あるいは  $(\alpha, n)$  によって生じる放射性崩壊によって起るので、測定データの頻度確率は次式のポアソン分布が仮定される。<sup>7)</sup>

$$nP_k = \frac{\lambda^k}{k!} e^{-\lambda} \quad (8)$$

ここで、 $k$  は  $10^3$  秒当りの計数で、 $\lambda$  は  $10^3$  秒当りの平均計数である。Fig.10 は 3 つの測定データをポアソン分布と比較したものである。

ポアソン分布の仮定に対する実測データの分散指数は次式で与えられる。

$$\chi^2 = \sum_{k=1}^k \frac{(n_k - nP_k(\lambda))^2}{nP_k(\lambda)} \quad (9)$$

燃料サンプルの測定値についての  $\chi^2$  は、Table 2 に示す通りである。本測定データの自由度は 5 であり、検定基準として 5% として両側検定の場合  $\chi_1^2 = 1.145$ 、 $\chi_2^2 = 11.07$ <sup>7)</sup> であり、いずれの  $\chi^2$  も  $\chi_1^2 < \chi^2 < \chi_2^2$  を満足する。したがって、燃料サンプルに対する測定データはポアソン分布の仮定と矛盾していないといえる。

### 4.2 パルス波高分布の検討

$\chi^2$  検定と併行して、測定値のパルス波高分布を  $^{252}\text{Cf}$  中性子に対するそれと比較し、測定データの有意性を調べた。Fig.11 は  $^{252}\text{Cf}$  中性子と燃料サンプルからの中性子による  $^{232}\text{Th}$  核分裂計数管の波高分布の比較である。ここで、燃料サンプルについての波高分布はすべてのデータを加算したものである。図にみられるように、燃料サンプルについての波高分布は、 $^{252}\text{Cf}$  のそれとほぼ一致しており、燃料サンプルからの中性子が正常に測定されていると判断される。

\* 通常 2～5% の値がとられる。

### 4.3 自然バックグラウンドの測定

自然バックグラウンドは、燃料サンプルを取除いた以外全く同一の条件で測定することにより求めた。10<sup>3</sup>秒の測定を146回繰り返した時のバックグラウンドのデータは0カウント141回、1カウント4回、2カウント1回であり、平均計数率は $4.1 \times 10^{-5}$  cpsである。これは、燃料サンプルを置いた時の3～4%となる。

なお、4.1節での $\chi^2$ 検定ではバックグラウンドは無視されている。

### 4.4 測定結果

以上の検討結果から、それぞれの燃料サンプルについての測定結果は、Table 3に示す通りである。なお、表中の誤差は統計誤差を表わしており、バックグラウンド測定に関する誤差、<sup>252</sup>Cf 校正線源の線源強度測定誤差、<sup>252</sup>Cf と燃料サンプルの形状の差異に基づく誤差、燃料サンプル内での中性子の自己吸収による誤差等は含まれていない。

バックグラウンドの測定誤差の影響は±1%以下、<sup>252</sup>Cf 校正線源の線源強度の誤差は3%以下である。

また、燃料サンプル自身による自己吸収は、サンプルを同体積の球形状で模擬することにより、サンプルの中心から4～10cm離れた位置での<sup>232</sup>Th(n, f)反応に対する反応率の変化をPALLAS-PL, SP-Br<sup>8)</sup>コードを用いて調べたところ3.2～3.5%の自己吸収が見られた。つまり、Table 3の結果にはこの自己吸収の効果は補正されていないので、もし上記の値で自己吸収を補正した場合には、Table 3の中性子放出率は約3%程度大きくなる。

一方、<sup>252</sup>Cf 線源と燃料サンプルは、Fig. 9 および Fig. 3 に示したようにわずかであるが形状に差異がある。そこで、Fig. 9 と同体積の球形状を有する燃料サンプルと Fig. 3 と同体積の球形状を有する燃料サンプルを仮定し、PALLAS-PL, SP-Br コードで形状の差異の影響を調べたところ、ほとんど差は認められなかった。したがって、Fig. 9 の<sup>252</sup>Cf 線源を校正線源として用いた場合の形状の誤差は無視しうるものと考えられる。

## 5. ま と め

以上の結果と問題点は次のようにまとめられる。

- 1) PWR 使用済燃料から採取した燃料小サンプルの中性子源強度が<sup>232</sup>Th 核分裂計数管と<sup>252</sup>Cf 中性子源を校正線源として利用することにより絶対測定された。
- 2) 燃料サンプルからの中性子に対する<sup>232</sup>Th 核分裂計数管の計数率は約10<sup>-3</sup> cps程度と極めて小さいものであったが、統計的データ検定( $\chi^2$ 検定)と波高分布の測定から有意な測定データが得られていることが確認された。
- 3) 本測定では、使用済燃料からの中性子スペクトルとしてORIGEN 2 コードの計算値を利用している。本測定がORIGEN 2等の線源強度計算コードの評価を目的としている点で、

### 4.3 自然バックグラウンドの測定

自然バックグラウンドは、燃料サンプルを取除いた以外全く同一の条件で測定することにより求めた。10<sup>3</sup>秒の測定を146回繰り返した時のバックグラウンドのデータは0カウント141回、1カウント4回、2カウント1回であり、平均計数率は4.1×10<sup>-5</sup>cpsである。これは、燃料サンプルを置いた時の3～4%となる。

なお、4.1節での $\chi^2$ 検定ではバックグラウンドは無視されている。

### 4.4 測定結果

以上の検討結果から、それぞれの燃料サンプルについての測定結果は、Table 3に示す通りである。なお、表中の誤差は統計誤差を表わしており、バックグラウンド測定に関する誤差、<sup>252</sup>Cf 校正線源の線源強度測定誤差、<sup>252</sup>Cf と燃料サンプルの形状の差異に基づく誤差、燃料サンプル内での中性子の自己吸収による誤差等は含まれていない。

バックグラウンドの測定誤差の影響は±1%以下、<sup>252</sup>Cf 校正線源の線源強度の誤差は3%以下である。

また、燃料サンプル自身による自己吸収は、サンプルを同体積の球形状で模擬することにより、サンプルの中心から4～10cm離れた位置での<sup>232</sup>Th(n, f)反応に対する反応率の変化をPALLAS-PL, SP-Br<sup>8)</sup>コードを用いて調べたところ3.2～3.5%の自己吸収が見られた。つまり、Table 3の結果にはこの自己吸収の効果は補正されてないので、もし上記の値で自己吸収を補正した場合には、Table 3の中性子放出率は約3%程度大きくなる。

一方、<sup>252</sup>Cf 線源と燃料サンプルは、Fig.9およびFig.3に示したようにわずかであるが形状に差異がある。そこで、Fig.9と同体積の球形状を有する燃料サンプルとFig.3と同体積の球形状を有する燃料サンプルを仮定し、PALLAS-PL, SP-Brコードで形状の差異の影響を調べたところ、ほとんど差は認められなかった。したがって、Fig.9の<sup>252</sup>Cf 線源を校正線源として用いた場合の形状の誤差は無視しうるものと考えられる。

## 5. ま と め

以上の結果と問題点は次のようにまとめられる。

- 1) PWR使用済燃料から採取した燃料小サンプルの中性子源強度が<sup>232</sup>Th核分裂計数管と<sup>252</sup>Cf中性子源を校正線源として利用することにより絶対測定された。
- 2) 燃料サンプルからの中性子に対する<sup>232</sup>Th核分裂計数管の計数率は約10<sup>-3</sup>cps程度と極めて小さいものであったが、統計的データ検定( $\chi^2$ 検定)と波高分布の測定から有意な測定データが得られていることが確認された。
- 3) 本測定では、使用済燃料からの中性子スペクトルとしてORIGEN 2コードの計算値を利用している。本測定がORIGEN 2等の線源強度計算コードの評価を目的としている点で、

このことは1つのパラドックスであるといえなくもない。しかし、測定データの処理で利用するのは中性子スペクトルの相対分布であり、その絶対値には無関係であること、また、使用済燃料の中中性子はその大部分が超Pu元素(特に $^{242}\text{Cm}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ )の自発核分裂によることを考えると、中性子スペクトルに大きな変化はないものと予測され、本測定法は中性子源強度の絶対測定法として受容できるものである。

- 4) 燃料サンプルからの中性子エネルギースペクトルを直接測定することが最も望ましいが、使用済燃料のようにガンマ線のバックグラウンドが極めて大きい場で利用しうる速中性子スペクトル測定器は現状では見当らない。3)項で述べたスペクトルの問題を解決するための1つの方法としては $^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管とレスポンスの異なる、 $^{237}\text{Np}$ 核分裂計数管や $^{238}\text{U}$ 核分裂計数管を併用することにより、エネルギースペクトルの変化による測定誤差を評価する方法が考えられる。
- 5) 本測定にかかわる誤差としては、統計誤差の他、 $^{252}\text{Cf}$ 中性子源強度の校正精度、燃料サンプルでの自己吸収の誤差、 $\sigma^{\text{SF}}$ や $\sigma^{\text{CF}}$ の誤差等の系統的な誤差が考えられるが、 $\sigma^{\text{SF}}$ や $\sigma^{\text{CF}}$ の誤差を除けば全体として±7～8%以内であると予測される。

この誤差範囲から見て、測定結果はPWR使用済燃料の中性子源強度が上下方向に分布していることを示している。

本実験は使用済燃料輸送キャスクの遮蔽実験に基づく、線源強度評価実験の一つとして成されたものであるが、実用燃料の中性子源強度の絶対測定に成功したはじめての例である。本測定法は検出効率の点等で今後幾つかの改良が計られなければならないが、使用済燃料からの中性子発生量を評価する問題は核燃料のダウンストリームとの関連で今後ますます重要になる分野であることを考えると、本実験の経験はこうした今後の課題に対する礎石となるものと期待される。

## 謝 辞

頭初に計画された一連の遮蔽安全実験計画は、本実験をもって全て完了した。一連の実験が所定の成果を得て無事終えることのできたのは、元安全解析部長 桂木 学氏、前同部長 平田 実穂氏、同次長 佐藤 一男氏、現安全解析部長 石川 迪夫氏をはじめ多くの方々の計画遂行のための努力があったことを記し、深甚の意を表します。また、使用済燃料の搬・出入、実験準備等、本実験の実施に当って岩本 多実 前実用燃料試験室長、児玉 敏夫 現実用燃料試験室長、八巻 治恵 燃料試験技術課長、坂倉 敦 燃料試験室長、神原 駿一郎 燃料試験業務課長をはじめ実用燃料試験室室員の方々から多大な協力を得ました。ここに記して謝意を表します。さらに、朝岡 卓見 原子炉工学部長、松浦 祥次郎 同次長、鈴木 友雄 遮蔽研究室長には終始多くの御援助をいただきました。ここに記して篤く御礼申し上げます。

最後に、本実験を進めるに当り実験装置の製作、燃料サンプルの準備、取扱いに於いて実用燃料試験室の山原 武、金井塚 文雄、岡崎 義人、三村 英明、白崎 昭夫の各氏の協力がありました。ここに記して感謝致します。

このことは1つのパラドックスであるといえなくもない。しかし、測定データの処理で利用するのは中性子スペクトルの相対分布であり、その絶対値には無関係であること、また、使用済燃料の中中性子はその大部分が超Pu元素(特に $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ )の自発核分裂によることを考えると、中性子スペクトルに大きな変化はないものと予測され、本測定法は中性子源強度の絶対測定法として受容できるものである。

- 4) 燃料サンプルからの中性子エネルギースペクトルを直接測定することが最も望ましいが、使用済燃料のようにガンマ線のバックグラウンドが極めて大きい場で利用しうる速中性子スペクトル測定器は現状では見当らない。3)項で述べたスペクトルの問題を解決するための1つの方法としては $^{232}\text{Th}$ 核分裂計数管とレスポンスの異なる $^{237}\text{Np}$ 核分裂計数管や $^{238}\text{U}$ 核分裂計数管を併用することにより、エネルギースペクトルの変化による測定誤差を評価する方法が考えられる。
- 5) 本測定にかかわる誤差としては、統計誤差の他、 $^{252}\text{Cf}$ 中性子源強度の校正精度、燃料サンプルでの自己吸収の誤差、 $\sigma^{\text{SF}}$ や $\sigma^{\text{CF}}$ の誤差等の系統的な誤差が考えられるが、 $\sigma^{\text{SF}}$ や $\sigma^{\text{CF}}$ の誤差を除けば全体として $\pm 7\sim 8\%$ 以内であると予測される。

この誤差範囲から見て、測定結果はPWR使用済燃料の中性子源強度が上下方向に分布していることを示している。

本実験は使用済燃料輸送キャスクの遮蔽実験に基づく、線源強度評価実験の一つとして成されたものであるが、実用燃料の中性子源強度の絶対測定に成功したはじめての例である。本測定法は検出効率の点等で今後幾つかの改良が計られなければならないが、使用済燃料からの中性子発生量を評価する問題は核燃料のダウンストリームとの関連で今後ますます重要になる分野であることを考えると、本実験の経験はこうした今後の課題に対する礎石となるものと期待される。

## 謝 辞

頭初に計画された一連の遮蔽安全実験計画は、本実験をもって全て完了した。一連の実験が所定の成果を得て無事終えることのできたのは、元安全解析部長 桂木 学氏、前同部長 平田 実穂氏、同次長 佐藤 一男氏、現安全解析部長 石川 迪夫氏をはじめ多くの方々の計画遂行のための努力があったことを記し、深甚の意を表します。また、使用済燃料の搬・出入、実験準備等、本実験の実施に当って岩本 多実 前実用燃料試験室長、児玉 敏夫 現実用燃料試験室長、八巻 治恵 燃料試験技術課長、坂倉 敦 燃料試験室長、神原 駿一郎 燃料試験業務課長をはじめ実用燃料試験室室員の方々から多大な協力を得ました。ここに記して謝意を表します。さらに、朝岡 卓見 原子炉工学部長、松浦 祥次郎 同次長、鈴木 友雄 遮蔽研究室長には終始多くの御援助をいただきました。ここに記して篤く御礼申し上げます。

最後に、本実験を進めるに当り実験装置の製作、燃料サンプルの準備、取扱いに於いて実用燃料試験室の山原 武、金井塚 文雄、岡崎 義人、三村 英明、白崎 昭夫の各氏の協力がありました。ここに記して感謝致します。



## 参 考 文 献

- 1) 田中, 山路, 坂本他: “使用済燃料輸送キャスクの遮蔽実験(1)「PWR使用済燃料によるキャスク形状評価のための実験」”, JAERI-M 82-201 (1982)
- 2) 田中, 山路, 坂本他: “使用済燃料輸送キャスクの遮蔽実験(2)「PWR使用済燃料による線源形状評価のための実験」”, JAERI-M 82-202 (1982)
- 3) Bell M. J.: “ORIGEN-The ORNL Isotope Generation and Depletion Code”, ORNL-4628 (1973)
- 4) Croff A. G.: “User's Manual for the ORIGEN 2 Computer Code”, ORNL/TM 7175 (1980)
- 5) Yokoyama T., Ueda M., Kurosawa F.: “Measurement and Analysis of Neutron Emission Rate for Irradiated BWR Fuel”, J. Nucl. Sci. Tech., 18(4), 249 (1981)
- 6) Stoddard D. H., Hootman H. E.: “ $^{252}\text{Cf}$  shielding Guide”, DP-1246 (1971)
- 7) ブラント S. (吉城他訳): “データ解析の方法”, みすず書房 (1976)
- 8) Takeuchi K., Tanaka S.: “PALLAS-PL, SP-Br: A Code for Direct Integration of Transport Equation in One-Dimensional Plane and Spherical Geometries”, JAERI-M 9695 (1981)

Table 2 Comparison of Poisson's distribution for the frequency of counting rate between measurement and calculation

k	Upper Part			Middle Part			Lower Part		
	$n_k$	$n_{pk}$	$(n_k - n_{pk})^2 / n_{pk}$	$n_k$	$n_{pk}$	$(n_k - n_{pk})^2 / n_{pk}$	$n_k$	$n_{pk}$	$(n_k - n_{pk})^2 / n_{pk}$
0	156	155.84	0.0002	72	66.247	0.4996	95	90.057	0.2713
1	180	172.36	0.3386	81	87.181	0.4382	105	114.462	0.7822
2	85	95.32	1.1173	57	57.365	0.0022	75	72.741	0.0702
3	33	35.14	0.1303	24	25.164	0.0538	34	30.818	0.3286
4	14	9.72	1.8846	9	8.279	0.0628	10	9.792	0.0044
5	2	2.15	0.0105	3	2.179	0.3093	1	2.489	0.8910
6	1	0.40	0.9000	1	0.478	0.5701	1	0.527	0.4238
$\lambda$		1.106			1.316			1.271	
$\chi^2$			4.3815			1.9362			2.7714

Table 1 Specification of spent fuel samples for neutron measurements

Region	Height of fuel sample ( mm )	Distance from the top of fuel rod ( mm )
Upper	14.5	633.0
	14.8	649.5
	15.0	666.3
	14.5	683.3
Middle	14.5	2450.0
	15.0	2466.5
	14.8	2483.5
	14.5	2500.3
Lower	14.5	2990.0
	15.0	3006.5
	15.0	3023.5
	14.5	3040.5

Table 3 Measured neutron source intensity per UO<sub>2</sub> volume of spent fuel

Region	Neutron emission rate* (neutrons/sec cm <sup>3</sup> )
Upper	4.05(±0.17) x 10 <sup>3</sup>
Middle	4.87(±0.27) x 10 <sup>3</sup>
Lower	4.69(±0.23) x 10 <sup>3</sup>

\* average of four fuel samples

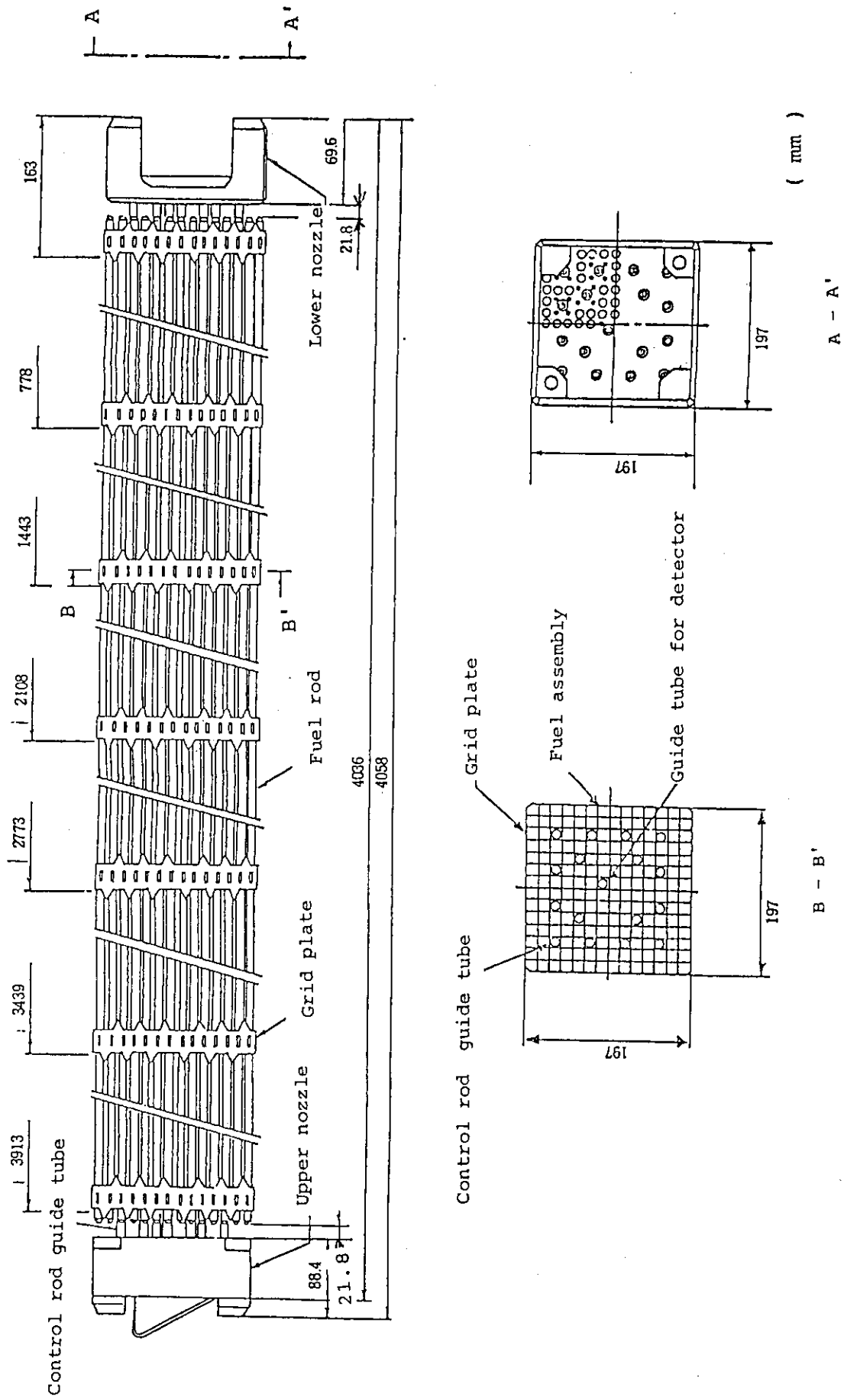
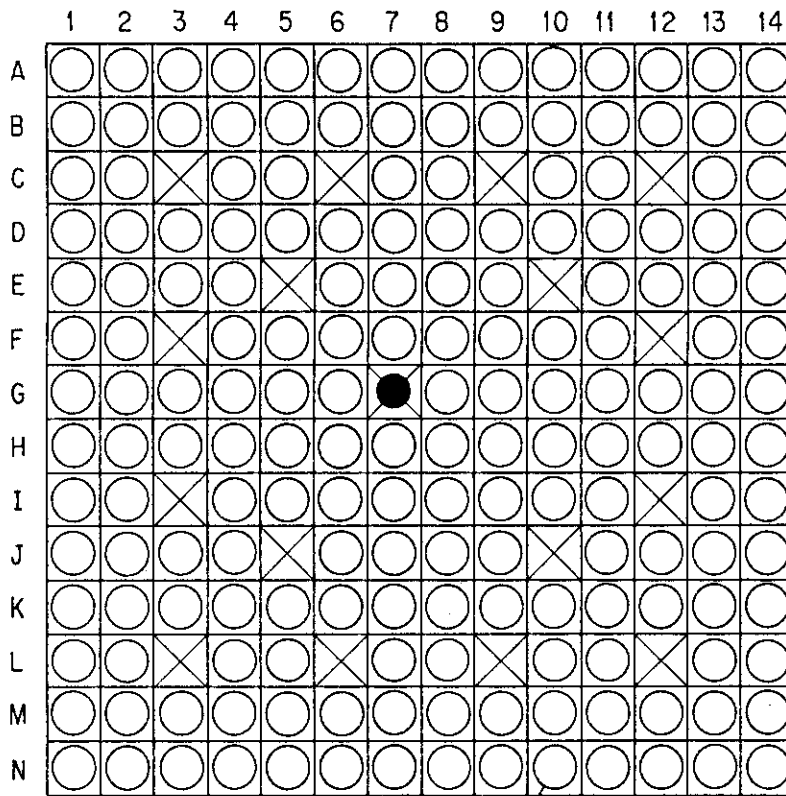


Fig. 1 Cross sectional view of PWR fuel assembly



Fuel rod for the experiment

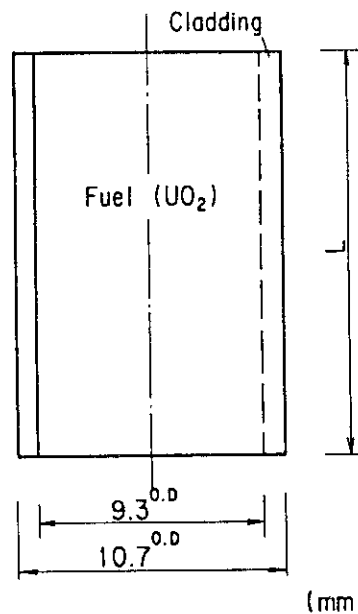


Control rod



Detector guide tube

Fig. 2 Arrangement of fuel rod of a PWR fuel assembly



(mm)

Fig. 3 Geometry of the spent fuel samples used for the neutron measurement

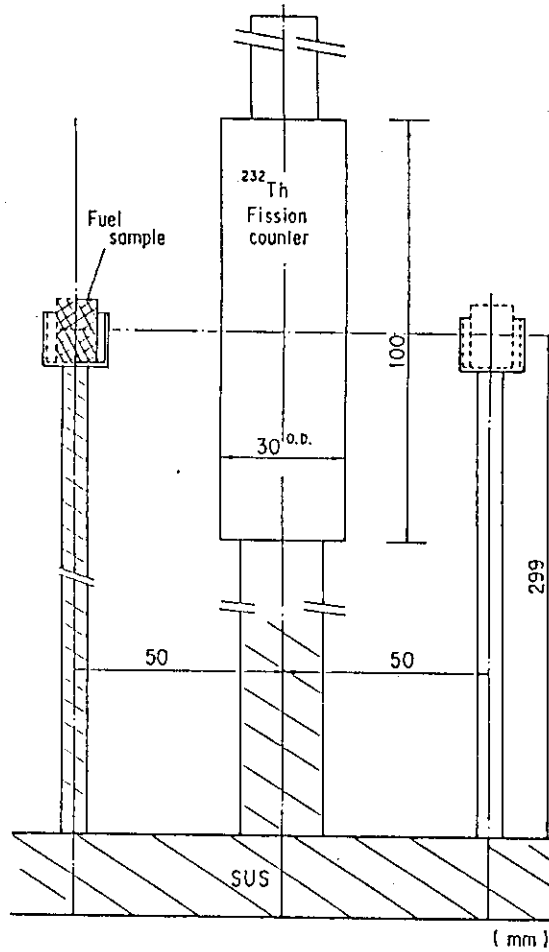


Fig. 4 Arrangement of a counter and fuel samples for the measurement

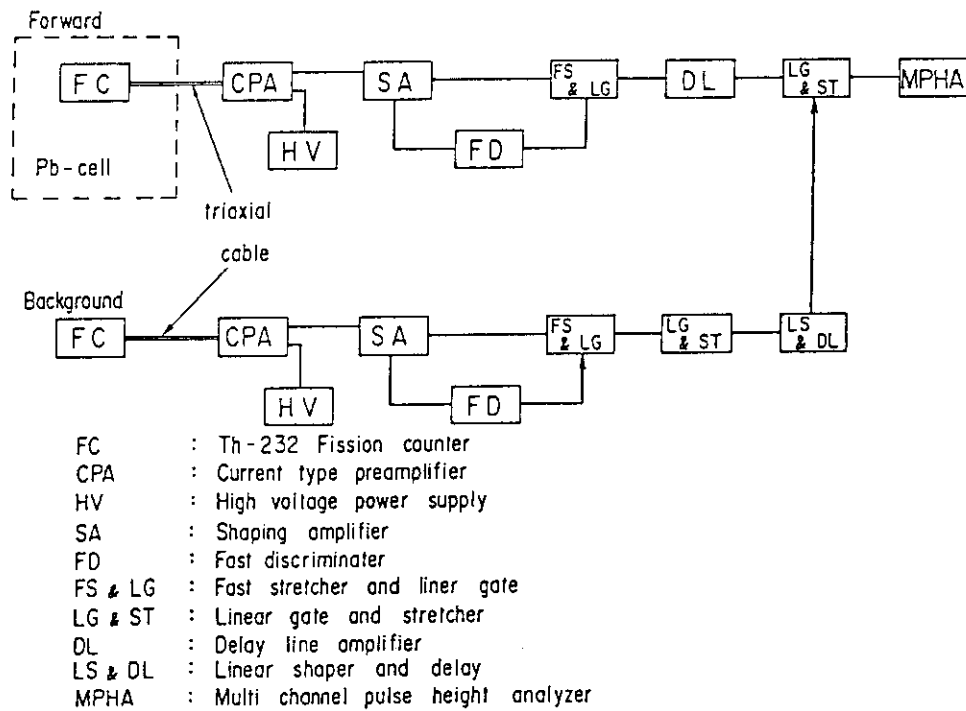


Fig. 5 Block diagram for neutron measurements with  $^{232}\text{Th}$  fission counter

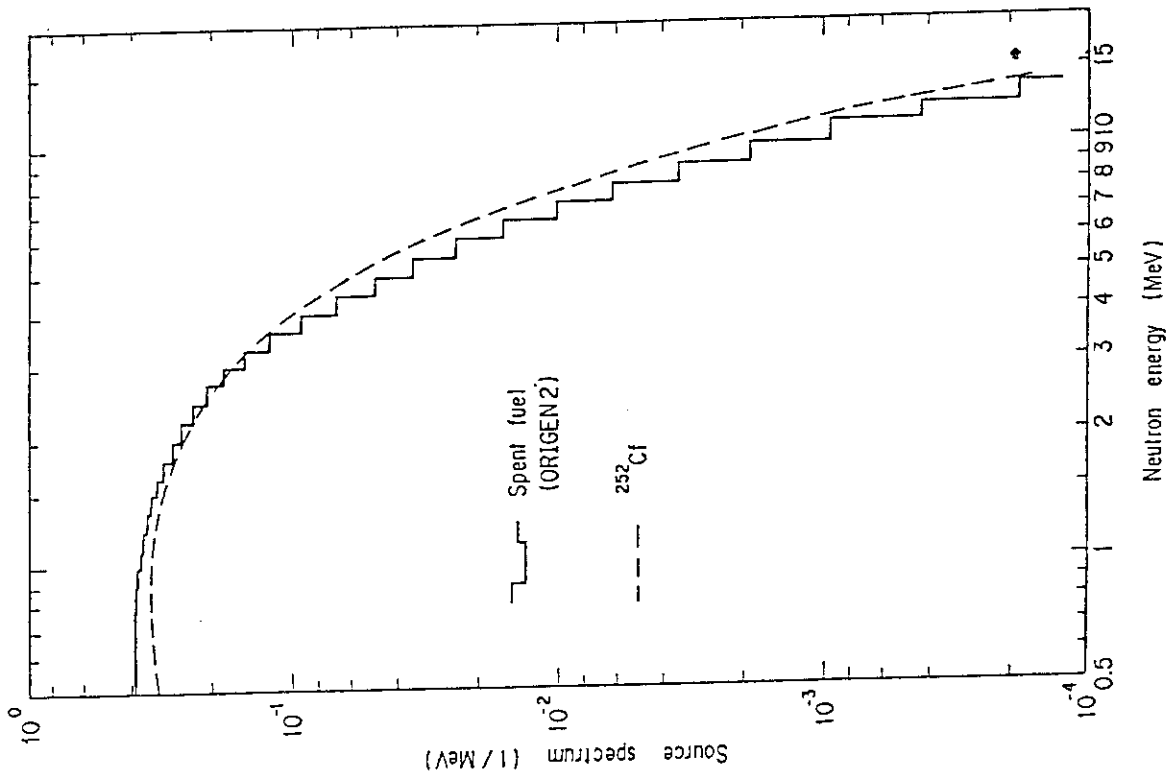


Fig. 7 Comparison of the neutron source spectrum between spent fuel and  $^{252}\text{Cf}$  source

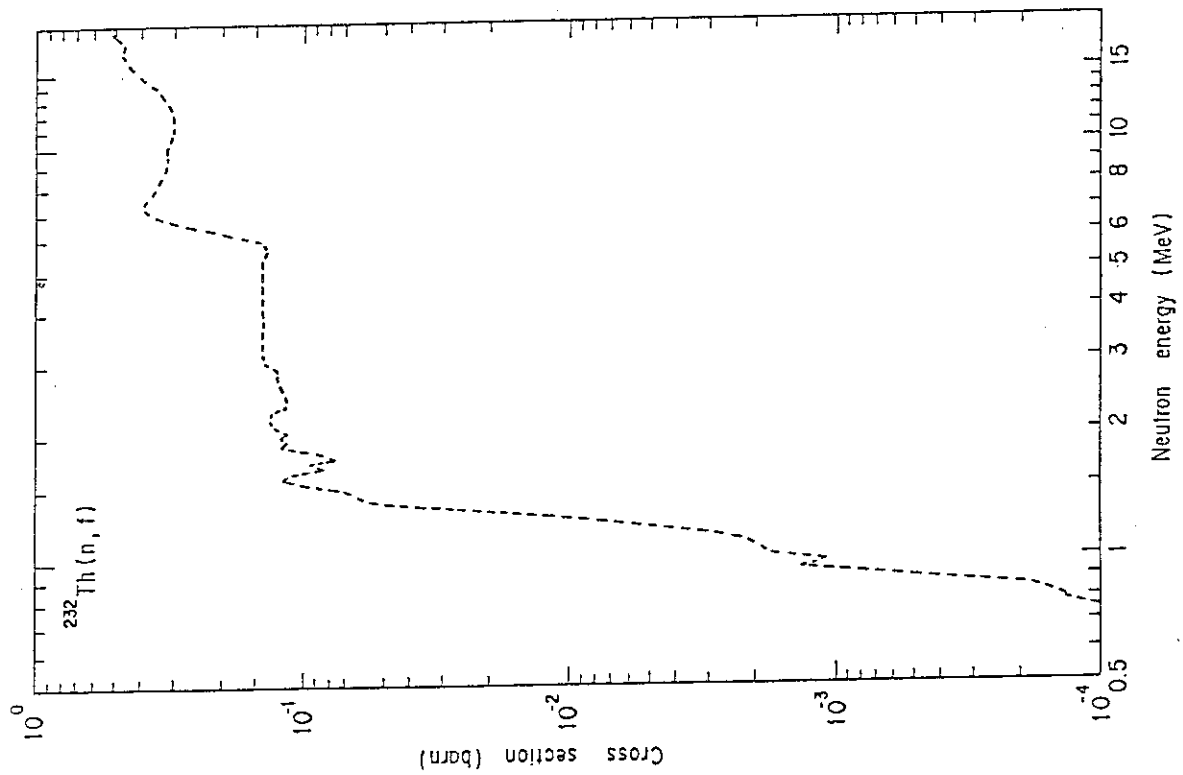


Fig. 6 Cross section of  $^{232}\text{Th}(n,f)$  reaction

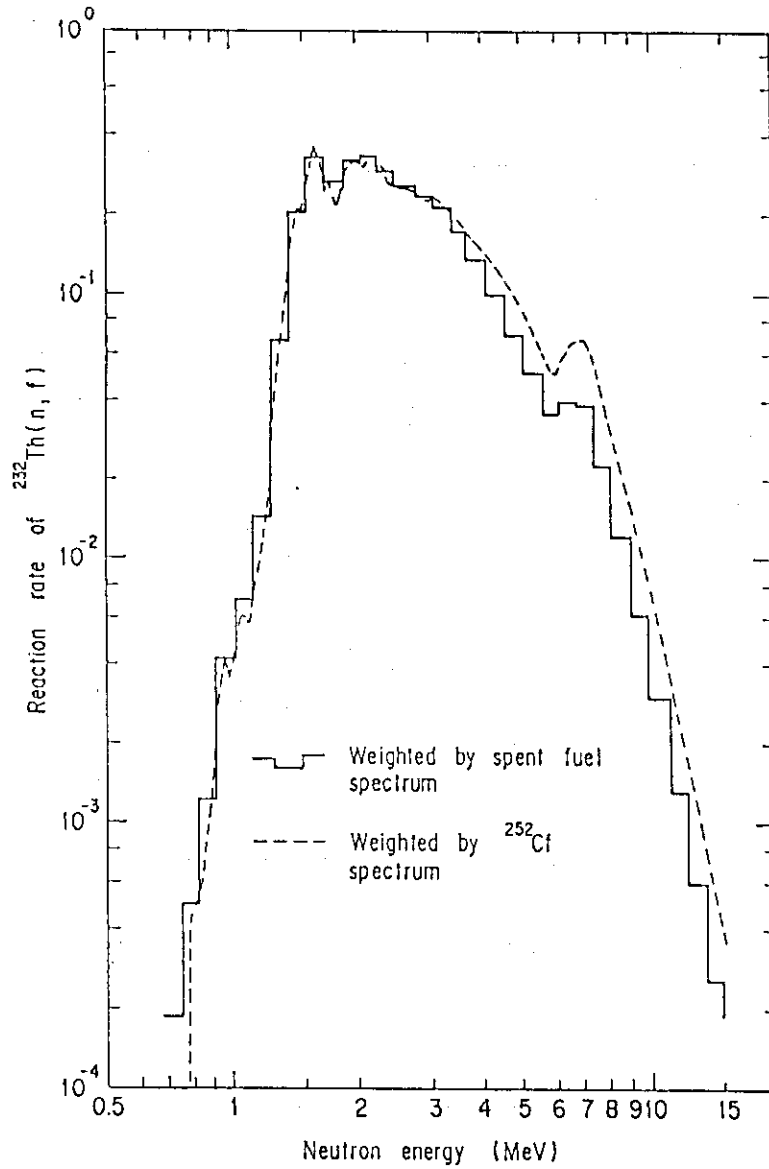


Fig. 8 Energy dependent reaction rates of  $^{232}\text{Th}(n,f)$  reaction weighted by the energy spectrum of spent fuel and

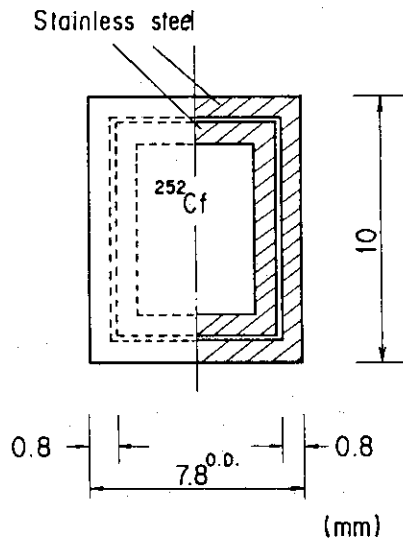


Fig. 9 Configuration of the  $^{252}\text{Cf}$  neutron source used for the calibration of  $^{232}\text{Th}$  fission counter  $^{252}\text{Cf}$  source



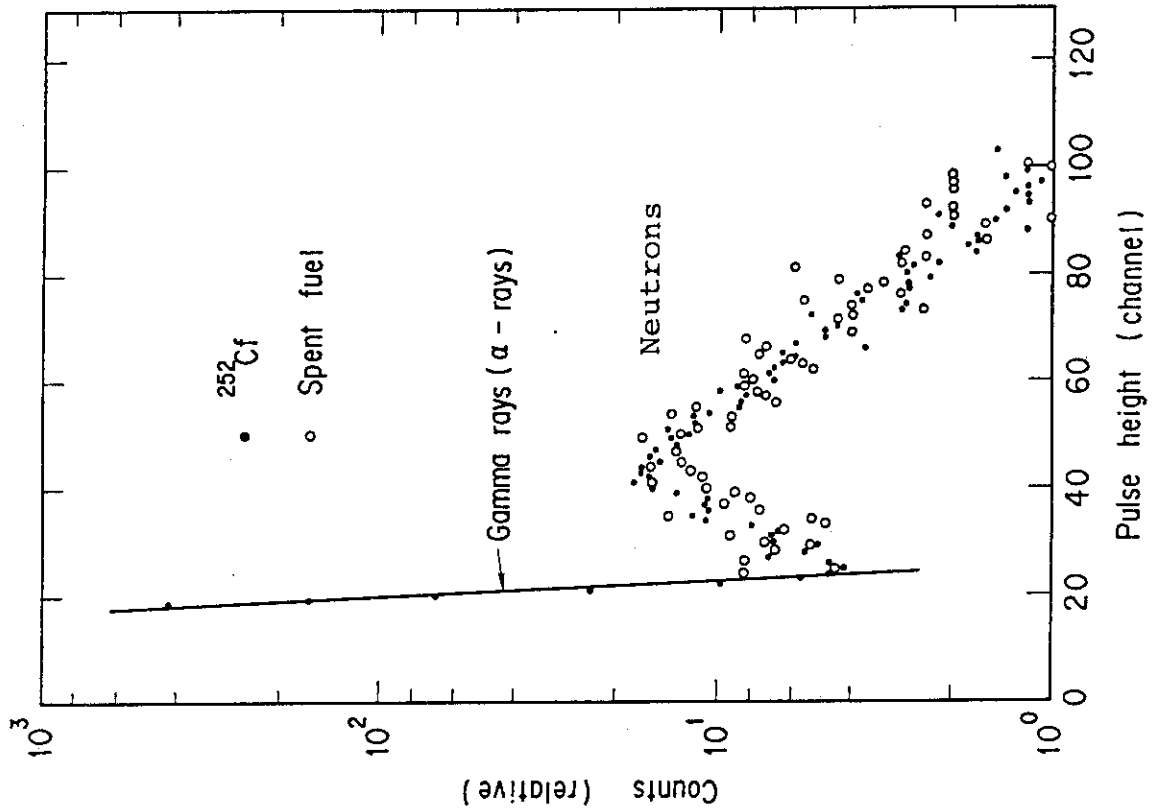


Fig. 11 Comparison of the pulse height distribution measured with  $^{232}\text{Th}$  fission counter for fuel samples and  $^{252}\text{Cf}$  sources

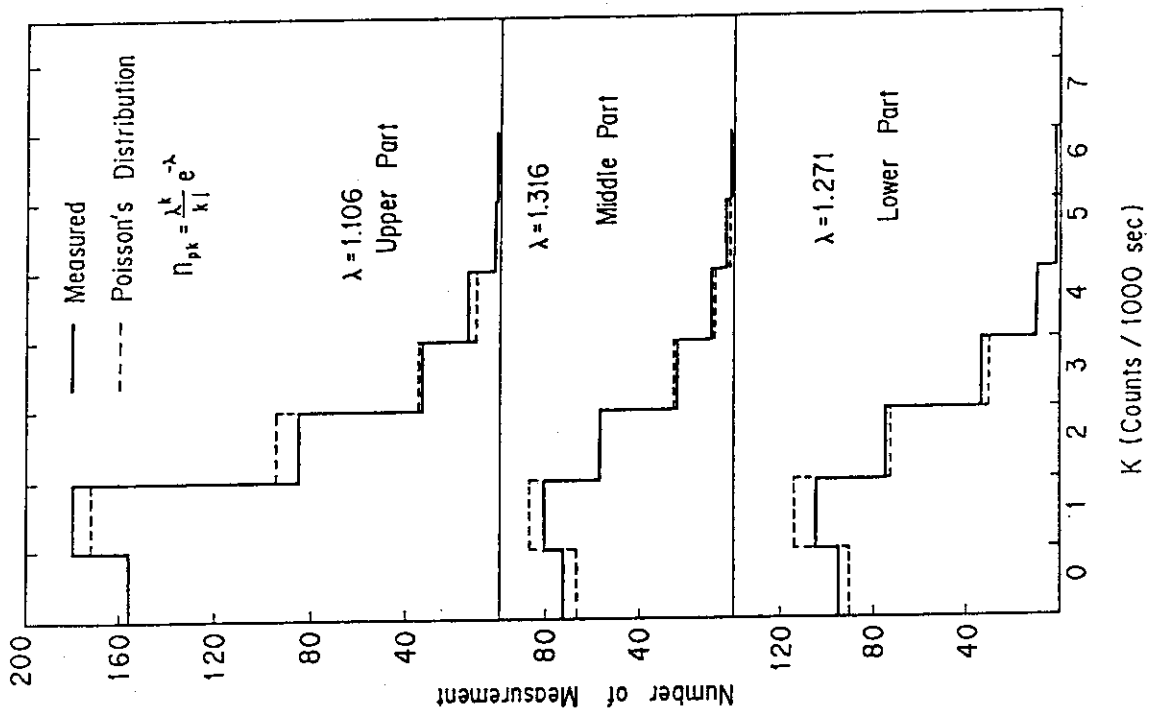


Fig. 10 Comparison between the frequency distributions of counting rate for each fuel sample and Poisson's ones

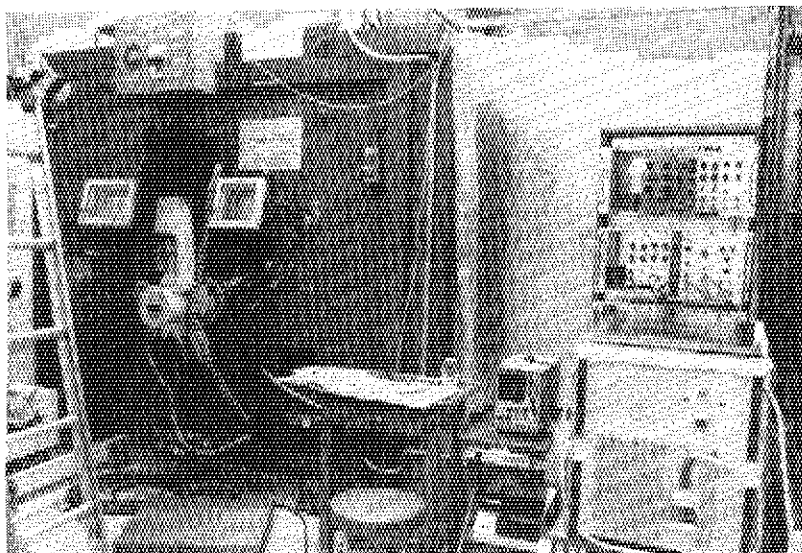


Photo. 1 Profile of the Pb cell and the measuring device used for the experiment

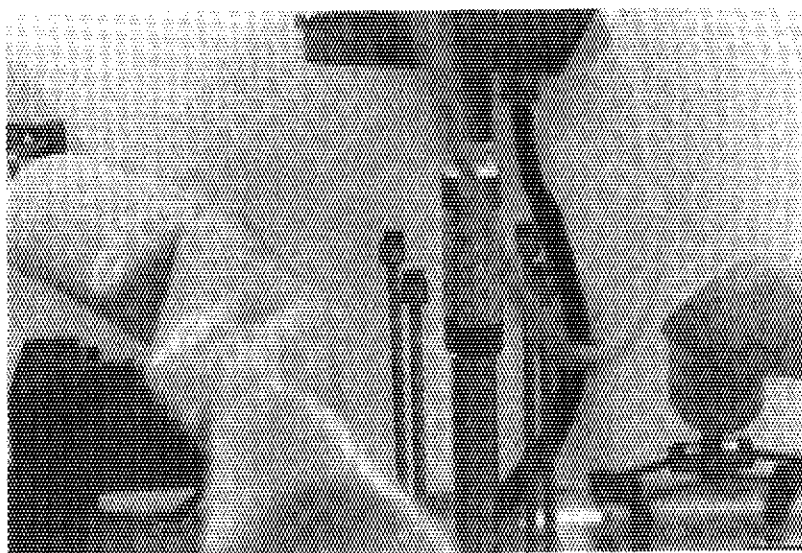


Photo. 2  $^{232}\text{Th}$  fission counter and four spent fuel samples arranged around the counter in the Pb cell

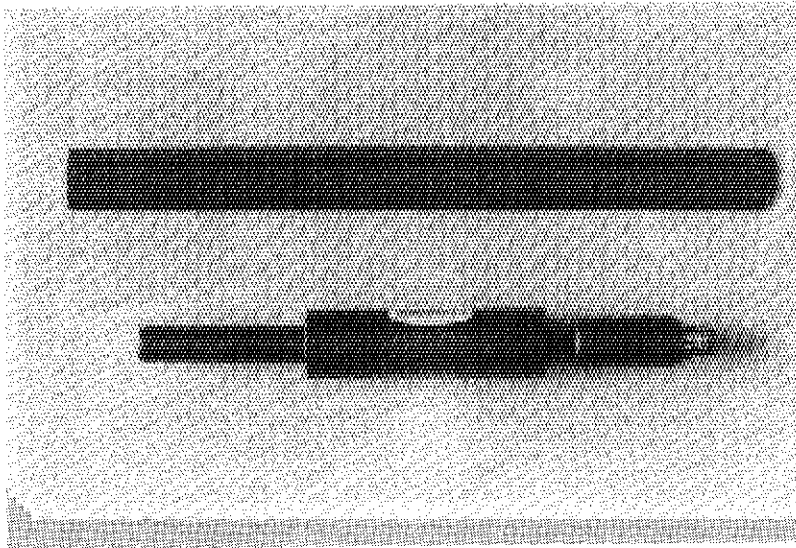
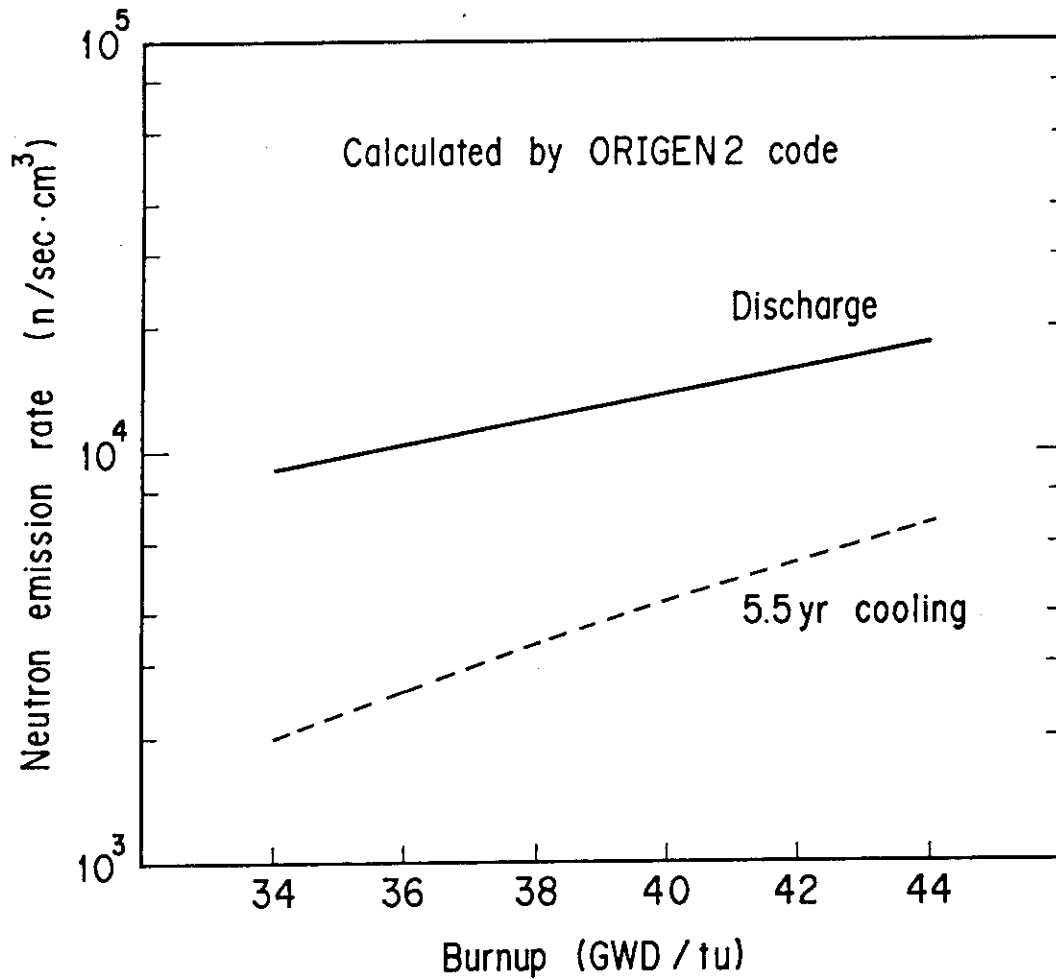


Photo. 3 FC-165A type  $^{232}\text{Th}$  fission counter

付録 ORIGEN2コードによるPWR使用済燃料の中性子放出強度の  
燃焼度依存性

付録の図は、本実験に利用したPWR使用済燃料の燃料履歴と冷却時間を模擬したPWR燃料からの中性子放出強度の燃焼度依存性である。



Appendix Neutron emission rate of a PWR spent fuel on 5.5 yr. cooling calculated with ORIGEN2 code